

第3部門第2区分

(43)公表日 平成6年(1994)6月16日

(51)Int.Cl.^a
A 01 N 57/20識別記号
G 9159-4H

F 1

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 19 頁)

(21)出願番号 特願平4-505681
 (86) (22)出願日 平成4年(1992)1月15日
 (85)翻訳文提出日 平成5年(1993)7月23日
 (86)国際出願番号 PCT/US92/00274
 (87)国際公開番号 WO92/12637
 (87)国際公開日 平成4年(1992)8月6日
 (31)優先権主張番号 645,365
 (32)優先日 1991年1月24日
 (33)優先権主張国 米国(US)
 (31)優先権主張番号 804,592
 (32)優先日 1991年12月13日
 (33)優先権主張国 米国(US)

(71)出願人 モンサント・カンパニー
 アメリカ合衆国、ミズーリ・63167、セント・ルイス、ノース・リンドバーグ・ブルバード・800
 (72)発明者 ブリル、アーハード・ジョン
 アメリカ合衆国、ミズーリ・63122、カーグウッド、ロケット・レイン・1215
 (72)発明者 リチヤードソン、ロナルド・オーエン
 アメリカ合衆国、ミズーリ・63011、エリスピル、フィールド・アベニュー・1231
 (74)代理人 弁理士 川口義雄(外2名)

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 改良されたグリホセート処方物

(57)【要約】

本発明は、雑草を枯死又は制御する場合に用いるためのN-ホスホノメチルグリシンを含有する農業上許容可能な組成物、雑草の枯死又は制御方法、及びこれらの組成物の製造方法に関する。組成物はドライ且つ水溶性であって、N-ホスホノメチルグリシン、酸受容体及び任意に固体又は液体界面活性剤を含有する。

請求の範囲

1. 腐草剤的有効量の実質的に未反応の4-ホスホノメチルグリシン及び感受性を含有する実質的にドライな、水溶性またはドライな、水分散性の農業上許容可能な組成物。
2. 約0.2～約15.0重量%の量で固体又は液体界面活性剤をさらに含有する請求項1記載の組成物。
3. 上記ドライ組成物が水溶性又は水分散性粉末、水溶性又は水分散性顆粒、水溶性又は水分散性液剤あるいは水溶性又は水分散性塊である請求項2記載の組成物。
4. 上記ドライ組成物中の水の量が全組成物の約0.01～約1.0.0重量%の範囲である請求項1記載の組成物。
5. 上記ドライ組成物中の水の量が全組成物の約0.2～約2.0重量%の範囲であって、上記組成物が顆粒形態である請求項4記載の組成物。
6. 上記感受性がアンモニウム及びアルカリ金属硫酸塩、重碳酸塩、酢酸塩、メタホウ酸塩、クエン酸塩、磷酸塩、シウ酸塩、リン酸塩、プロピオン酸塩、ピロリン酸塩、メタケイ酸塩、オルトケイ酸塩、亜硫酸塩、チオ硫酸塩、テトラホウ酸塩、

トリポリリン酸塩、メタリン酸塩、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、四ナトリウムEDTA、及びその混合物からなる前から選択される請求項1記載の組成物。

7. さらに補助防腐剤を含有する請求項1記載の組成物。
8. さらに分散剤又は腐食防止剤を含有する請求項1又は7記載の組成物。
9. さらに増粘剤を含有する請求項1又は7記載の組成物。
10. さらにカルシウムイオン封鎖剤及び／又は消泡剤を含有する請求項1又は7記載の組成物。
11. さらに農業上許容可能なアンモニウム塩又は他の共鳴剤を含有する請求項1又は7記載の組成物。
12. さらに急速崩壊添加剤を含有する請求項1又は7記載の組成物。
13. さらに温調剤を含有する請求項1又は7記載の組成物。
14. さらに染料又は顔料を含有する請求項1又は7記載の組成物。
15. 上記補助防腐剤が水溶性塩を形成する請求項6又は7記載の組成物。
16. 上記補助防腐剤が、2,4-D(2,4-ジクロロフェノ

キシ酸)、ジカンパ、(3,6-ジクロロ-2-アニス酸)、ピクロラム(4-アミノ-3,6,6-トリクロロピリジン-2-カルボン酸)、MCPA(4-クロロ-2-トリロキシ酸)、ピアラフォス(DL-ホモアラニン-4-イル-メチルホスフィキート)、イマダクイン、(2-[4,5-ジヒドロ-4-メチル-4-(1-メチルエチル)-5-オキソ-1H-イミダゾール-2-イル]-3-キノリンカルボン酸)、ダラボン(2,2-ジクロロプロピオン酸)、シクロールプロップ2-(2,4-ジクロロフェノキシ)プロピオン酸)、MCPB(4-(4-クロロ-2-トリロキシ)酸)、アシフルオルフェン(5-(2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ-2-ニロトベンゾエート)、クロラムベン(9-アミノ-2,5-ジクロロ安息香酸)、エンドタール(7-オキサビシクロ(2,2,1)ヘプタン-2,3-ジカルボン酸)、2,4,5-T(2,4,5-トリクロロ酢酸)、2,3,6-TBA(2,3,6-トリクロロ安息香酸)、グルホシネート-アンモニウム(3-アミノ-3-カルボキシプロピル)-メチルホスフィキート)、イマダビル(2-[4,5-ジヒドロ-4-メチル-4-(1-メチルエチル)-5-オキ

ソ-1H-イミダゾール-2-イル]-3-ビリジンカルボン酸)、及びその混合物からなる前から選択される請求項7記載の組成物。

17. 上記補助防腐剤が本質的に水不溶性である請求項7記載の組成物。
18. 上記水不溶性補助防腐剤が微細粉末として上記水分散性組成物中に存在する請求項17記載の組成物。
19. 上記水不溶性補助防腐剤が水分散性颗粒として上記組成物中に存在する液体又は固体であって、アラクロール(2-クロロ-2',6'-ジエチル-N-メトキシメチルアセトアニリド)、アトラジン(2-クロロ-4-エチルアミノ)-6-(イソプロピルアミノ)-6-トリアジン、シマジン(6-クロロ-N,N'-ジエチル-1,3,6-トリアジン-2,4-ジアミン)、アセトクロール(2-クロロ-2'-エチル-6'-メチル-N-エトキシメチルアセトアニリド)、メトラクロール(2-クロロ-6'-エチル-N-(2-メトキシ-1-メチルエチル)アセト-6-トルイジド)、ホタサフエン(5-[2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ]-N-(メチルスルホニル)-2-ニトロベンザミド)、

オキシフルオルフェン（2-クロロ-1-(3-エトキシ-4-ニトロフェノキシ)-4-(トリフルオロメチル)ベンゼン)、フェノキサブロップ-エチルエチル-2-[4-(6-クロロ-2-ベンゾキサゾリルオキシ)フェノキシ]プロパンエート)、クワロン(N'-[(8,4-ジクロロフェニル)-N,N-ジメチルウレア])、メトスルフロン-メチル(メチル-2-[[(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)アミノ]カルボニル]アミノ]スルホニル)安息香酸塩)、クロラムロン-エチル エチル-2-[(<4-タロロ-6-メトキシビリミン-2-イル)アミノ]カルボニル]アミノ]スルホニル]安息香酸塩)、リタロン-3-(3,4-ジクロロフェニル)-1-メトキシ-1-メチルウレア)、スルホメツロン-メチル(2-[3-(4,6-ジメチル-ビリミン-2-イル)ウレイドスルホニル]安息香酸)、クロルスルフロン(1-(2-タロロフェニルスルホニル)-3-(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアジン-2-イル)ウレア)、及びその混合物から選択される請求項17記載の組成物。

20. 水溶性塗としての上記補助剤が請求項1記載の上記組

成物と配合される請求項7記載の組成物。

21. 上記界面活性剤が非イオン性界面活性剤、陽イオン性界面活性剤、陰イオン性界面活性剤、兩性界面活性剤、又はその混合物を包含する請求項1記載の組成物。

22. 上記非イオン性界面活性剤がポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロックコポリマー、アルキルフェノールポリオキシエチレンヌーテル、ポリオキシエチレンオレイルエーテル、又はその混合物である請求項21記載の組成物。

23. 上記陰イオン性界面活性剤がナトリウムテウリル硫酸塩、ナトリウムアルファ-オレフィンスルホン酸塩、カリウムアルファ-オレフィンスルホン酸塩、ナトリウムアルカンスルホン酸塩、カリウムアルカンスルホン酸塩、アンモニウムアルカンスルホン酸塩、イソプロピルアンモニウムアルカンスルホン酸塩、ナトリウムアルキル又はジアルキルテフタレンスルホン酸塩、あるいはその混合物である請求項21記載の組成物。

24. 上記陽イオン性界面活性剤が、エトキシ化脂肪アミン、アンモニウムオキシド、例えばラウリルジメチルアミンオキシド、N,N-ビスヒドロキシエチルココアミンオキシド、プロポキシ化第四アンモニウム化合物、又はその混合物である請求項21

記載の組成物。

25. N-ホスホノメチルグリシンが、アンモニウム、イソプロピルアミン、トリメチルスルホニウム、イミノウレア、カリウム、ナトリウム塩、又その混合物からなる粉から選択される水溶性塗の形態である請求項1記載の組成物。

26. 請求項25記載の上記組成物を含有し、さらに硫酸アンモニウム、硫酸カリウム、塩化カリウム、硫酸ナトリウム、ウレア、その混合物等を含有するドライ水溶性組成物。

27. 各成分 N-ホスホノメチルグリシン、吸湿固体、任意に固体又は液体界面活性剤を混合し、その後上記混合物成分を配合して上記組成物を生成するか、又は上記組成物を圧縮又は乾燥化して固形を生成することからなるドライな水溶性の農業上許容可能な組成物の製造方法。

28. 枯死又は制御すべき植物又は雑草の場所に除草剤的有効量のグリキセートを適用することによる請求項1記載の組成物を用いた雑草の枯死又は制御方法。

29. 補助剤が上記N-ホスホノメチルグリシン、上記吸湿固体及び任意に上記固体又は液体界面活性剤と混合される請求項28記載の方法。

30. さらに上記組成物を被膜、塗、粉末又は顆粒あるいはその混合物の忍耐で水と混合し、枯死又は制御すべき植物又は雑草の場所に除草剤的有効量のグリキセートを適用することからなる請求項29の雑草の枯死又は制御方法。

31. 請求項1記載の組成物を有する液剤、塗、粉末又は顆粒。

32. 水溶性であり、長さ約2インチ(5,08センチメートル)×幅約1/2インチ(1,27センチメートル)×厚さ約1/2インチ(1,27センチメートル)である請求項31記載の液剤。

明細書

改良されたグリホセート塩方物

実業上の利用分野

本発明は、N-ホスホノメチルグリシン又はその塩を含有する実質的にドライな農業上許容可能な組成物、除草の枯死又は制御に關してのこのような組成物の使用、及びこのような組成物の製造方法に関する。

グリホセート（N-ホスホノメチルグリシン）は實質的な除草剤として當量界で十分公知である。有機酸であるグリホスフェートは、本に少しだけ溶解する。グリホセートは一般に商業的に給方され、水溶性塩として、特にイソプロピルアミン塩（IPA塩）として用いられる。

グリホセートの個々の給方物、グリホセートの塩、グリホセートの塩の製造方法及びその使用方法は、米国特許第3,799,758号及び第4,405,531号（それぞれ1974年3月26日及び1983年9月20日にJohn B. Francisに対して発行）に開示されている。グリホセートの塩を開示する他の米国特許としては、米国特許第4,315,765号（1982年2月16日にGeorge

B. Largeに対して発行）、米国特許第4,507,250号（1985年3月26日にIshak Bakelに対して発行）、米国特許第4,397,676号（1983年8月9日にIshak Bakelに対して発行）、米国特許第4,481,026号（1984年11月6日にMichael P. Prisbyllaに対して発行）、米国特許第4,140,513号（1979年2月20日にBerhard J. Prillに対して発行）が挙げられる。

Aikaloida Vegyessetに開示されたハンガリー特許出願第431/88号は、水溶性植物成長制御固体活性劑N-ホスホノメチルグリシン及びその誘導体を皮膜塗及び成膜水溶液と、並びに過剰の植物保護錠加剤と混合物することを開示する。十分な開始水を添加して、これらの化合物間の複分解反応の程度を管理する。降られた固体をコロイド化学的手法で泡、クリーム、懸液、ペースト及び粉末、顆粒又は圧縮物として包装される殺蟲農薬粉末に変換する。

Wellcome Foundation Limitedに開示され、1984年12月12日に公開された歐州特許出願第0,127,773 A1号は、殺虫剤、殺虫剤のための

乳化剤又は分散剤、及び水との接触時に泡起又は膨潤可能な自己崩壊剤を含有する殺虫剤組成物を開示する。本組成物は、起泡性殺虫剤錠剤の形態が便利であると開示されている。

1982年10月6日に公開された英國特許出願第2,085,556 A号は、殺生物用ホルムアルデヒドを生成するプロ殺生物剤、二酸化炭素を発生するための泡起カッブル、及び任意に界面活性剤を含有する組ましくない微生物の存在を制御するための組成物を開示する。

Kirby Pharmaceuticals Limitedに開示され、1978年8月30日に公開された英國特許明細書第1,505,738号は、化学化合物、アルカリ金属電離度塩、アルカリ金属炭酸塩及び固体の水溶性固体酸カルボン酸又はその塩塩を含む粉末を直接圧縮方法により組成物に直接加圧することを包含する起泡剤剤形態で混合された水溶性化学組成物の製造方法を開示する。

SOGEMARICに開示され、1978年7月5日に公開された英國特許明細書第1,518,682号は、固体形態で、即ちそれが固体である場合には活性物質單独で、あるいはそれが液体である場合には固体の不活性支持体上に含浸させた1つ

又はそれ以上の活性物質兩生物質（除草剤、成長調節剤、殺虫剤、殺カビ剤）を湿润性粉末の製造に一般的に用いられる湿润の添加剤、湿润剤、分散剤と、そしてその明細書に記載の非親水性充填剤及び錠解剤と混合される混合物を開示する。混合物を均質化し、次に50～1000 kg/cm²の範囲の圧力下で、好みしくは100～600 kg/cm²の範囲の圧力下で必要な形態の錠剤又はペレットに圧縮する。

デュポン（DuPont）PCT/US89/0272は、約100℃で溶融し、約5%以下の水溶性度を有する本質的に約20～75%の殺虫剤から成る錠剤、並びに本質的に二極基性又は三極基性有機カルボン酸、アンモニウム又はアルカリ度塩又は重炭酸塩、分散剤、PVP及び陽イオン又は陰イオン性界面活性剤から成り、それにより水中の殺虫剤の分離が50メッシュスクリーンを通過するのに十分に微細になる送出系を開示する。

チバガイギー（Ciba Geigy）AU-A-59042/90は、水中で崩壊して噴霧可能な懸濁液を生じ、本質的に水不溶性活性成分、界面活性剤、充填剤及び結合剤、流動調節剤及び崩壊剤から成る起泡性殺虫剤形態の殺虫剤活性成

分離物であって、脱酸カリウム及び/又は脱酸水素カリウム、固体水溶性酸性物質及び水を結合し得る兼細水不溶性物質から成る泡性颗粒の形態で崩壊剤を含有する濃縮物を開示する。

デュポン (DuPont) EPO特許出願第0, 380, 441号は、水溶性颗粒及び水分分散性颗粒組成物を開示しており、それによりグリセートが脱酸カリウムとともに粒状基質として開示される。

チバガイギー (Ciba Geigy) U-A-29886/88は、スルホニルウレア、分散剤及び崩壊剤を含有し、さらに固体水溶性酸性物質、アルカリ/アルカリ土重金属ノ脱酸水素塩、聚り又は流動調節剤及び任意に充填剤又は結合剤を含有する泡性压縮殺虫剤を開示する。

Rhone Poulenの英国特許明細書第2, 104, 780 A号は、脱酸草剤又は植物成長調節剤、アルカリ脱酸塩ノ崩壊剤、除草剤活性添加物からの不純物及び界面活性剤又は表面の水溶性颗粒であるといわれる泡性除草剤颗粒を開示する。

EPO特許出願公開第0, 204, 146号は、(a) 2-(4-クロロ-2-フルオロー-5-プロパルギルオキシフェニ

ル)-5, 6, 7, 8-テトラヒドロ-1H-1, 2, 4-トリアゾロ(1, 2-ε)ピリダジン-1, 3, -2H-ジオニン(I)を(b)グリセート(I)グリコシネット(I)ピアラホス(III)及び/又はバラクアト(1, 1'-ジメチル-4, 4'-ビビリクニウムイオン)(IV)又はそれらの塩及び不活性キャリアー又は着色剤とともに含有する除草剤組成物を開示する。

EPO特許出願公開第0, 285, 700号は、農業化学物質、陰イオン性界面活性剤及び任意に1つ又はそれ以上の添加剤の混合物を濃縮溶液又は水性スラリーの形態で乾燥塔の上部に導入することにより固型される粒状肥皂組成物を開示する。

日本国特許出願公開第0, 62175407号及び第0, 62175408号は、固体キャリアー、添加剤及び除草剤成分を含有し、48~150メッシュの粒子サイズを有する除草剤を開示する。開示除草剤成分は、(3-アミノ-3-カルボキシ)プロピル-1)メチル-ホスキン酸、N-ホスホノメチルグリシン、(2-アミノ-4-メチルホスフィノーブチラル)アラニルアラニン及びその塩である。

欧洲特許出願公開第0, 206, 587号は、植物活性N-

ホスホノメチル-3-カルボキシメチル化合物と直結で固体である界面活性剤との均質混合物を含有する固体の、実質的に非吸湿性的植物活性組成物を開示する。

欧洲特許出願公開第0, 256, 608号は、(a)環形態の植物活性N-ホスホノメチル-N-カルボキシメチル化合物を液体アミンと反応させて上記N-ホスホノメチル-N-カルボキシメチル化合物のアミン塩を生成し、(b)上記N-ホスホノメチル-N-カルボキシメチル化合物の上記アミン塩を均質界面活性剤(周囲温度で固体である)と混合して、(c)上記混合物を界面活性剤の融点以下に冷却して、上記界面活性剤及びそのマトリックス中に介在分散したN-ホスホノメチル-N-カルボキシメチル化合物の上記アミン塩を含有する周囲温度で固体である組成物を生成することからなる固体植物活性組成物の製造方法を開示する。

国际特許第WO 87/04595号は、グリセートのナトリウム塩及び次式:



(式中、R¹及びR²は独立してメチル又はエチルであり、R³はメチル、エチル、ペンジル又はC₁₀~C₁₁アルキルであり、R⁴はC₁₀~C₁₁アルキルであり、Xはクロロ又はブロモである)を有する界面活性剤を含有する除草性水溶性ドライグリセート处方物を開示する。

日本国特許公報145, 205-88号は水溶性グリセート塩、硫酸アンモニウム及び第四アンモニウム塩を含有する水性濃縮除草剤处方物を開示する。

PCT/WO 87/04712は、固体アルカリ金属塩を保持しながら25%までの水を含有するN-ホスホノメチルグリシンに添加することからなるN-ホスホノメチルグリシンの粒状アルカリ金属塩の製造方法を開示する。

1986年11月付けの研究報告書は、刊行物27161で、N-ホスホノメチルグリシン、非イオン性界面活性剤、ケイ酸土、崩壊剤(硫酸アンモニウム)及び消泡剤を含有する植物の割剤に有効な殺菌性粉末处方物を開示する。

Chemical Abstracts 103:

191395k (1985) グリセートの調整。

Davydov, A. M.; Vechtomova, T. N.;

Basunova, G. G. (USSR), Zashch.,
Rast. (Moscow) 1985, (9), 40-1
(Russia) は、36%水溶性液体 (I) [96638-41-4] 及び 50%粉未 Fosfida (II)
(これらはグリセートのリビエトの商標である) を示す。

本発明の要約

本発明は、実質的に未反応の N-ホスホノメチルグリシン、吸収体及び任意に固体及び又は液体界面活性剤を含有する実質的にドライな、水溶性または分散性の農業上許容可能な組成物を包含する。任意の液体界面活性剤は、存在する場合は好ましくは約 0.2~約 1.5.0 重量%、さらに好ましくは 0.2~1.0 重量%であるが、他の始方成分によってはさらに多量の任意の液体界面活性剤を用いてよい。

農業上許容可能なという用語は、自家所有者、及びアパート領域、並びに使用すると便利な工業、住宅及びその他の同様の領域における本発明の組成物の使用を含む。

本発明の組成物はさらに、硫酸アンモニウム、アルカリ金属硫酸塩、例えば硫酸カリウム、硫酸ナトリウム、アルカリ金属塩化物、例えば塩化カリウム、ウレア、その混合物等を任意に

含有する。組成物は任意に、相乗剤、急速燃焼剤、湿润剤、補助草剤、染料、顔料、腐食防止剤、増粘剤、分散剤、カルシウムイオン封鎖剤、その混合物等を含有する。

本発明の組成物の製造方法においては、実質的にドライな水溶性の農業上許容可能な組成物は、実質的に未反応の N-ホスホノメチルグリシン及び吸収体、並びに任意に固体又は液体界面活性剤を、任意に鉛錫酸アンモニウムと一緒に混合し、その後配合し、例えばこれら説明した成分及び任意の部分を湿式押出することにより乾燥化し、圧縮し、流化し、又は颗粒化し、本発明の組成物を生成する。

本発明の目的

本発明の目的は、自家所有者及び住居市場を含めた使用のためのドライ水溶性農業上許容可能なグリセート組成物を提供することである。

本発明の目的は、任意に界面活性剤を含有するドライ水溶性粉未又は粒状農業上許容可能な組成物の製造方法を提供することである。

本発明の別の目的は、実質的にドライな水溶性農業上許容可能な組成物を用いて雑草を枯死及び抑制するために用いる除草

方法を提供することである。

古くに本発明の目的は、低成本で輸送できて、除草活性成分 (N-ホスホノメチルグリシン、吸収体、任意の界面活性剤) の含量を増大した、貯蔵安定性組成物を生成するために相溶的方法で種々の補助草剤と混合物を得る、そして所望により可燃性又はリサイクル可能な又は使い捨ての容器に包装できて、使用が容易である実質的にドライな水溶性農業上許容可能な組成物を提供することである。

これらの及び他の目的は、後述でさらに詳細に説明する本発明において達成される。

本発明の詳細な説明

本発明は、N-ホスホノメチルグリシン、吸収体及び任意に固体又は液体界面活性剤を含有する実質的にドライな、水溶性 (好ましくは粉末又は顆粒の) 農業上許容可能な組成物を包含する。

実質的にドライな密度として、例えば粉末として調製する場合、粉末は一般的には約 - 50 メッシュ未満であって、約 0.01 重量%~約 1.0.0 重量%、好ましくは約 2 重量%未満であるがしかし 0.2 重量%以上の水を含むし、過剰される

地方物成分によりそれより多くても少なくともよい。

所望により、相乗剤、腐食防止剤、増粘剤、分散剤、カルシウムイオン封鎖剤、相乗剤、急速燃焼剤、湿润剤、補助草剤、顔料又は顔料を別々に又は混合的に組成物に混合物してもよい。

所望により、水溶性塩を生成するある種の補助草剤を用いてよい。このような補助草剤は、2,4-D (2,4-ジクロロフェノキシ酢酸)、ジカンバ (3,6-ジクロロ-6-アニス酸)、ピクロラム (4-アミノ-3,5,8-トリクロロピリジン-2-カルボン酸)、MCPA (4-クロロ-2-トリクロキシ酢酸)、グラボン (2,2-ジクロロプロピオニ酸)、ジクロールプロップ 2-(2,4-ジクロロフェノキシ) プロピオニ酸)、MCPB (4-[4-クロロ-2-トリル]オキシ) 酢酸)、アシフルオルフェン (5-[2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ]-2-ニトロベンゾエート)、クロラムベン (3-アミノ-2,5-ジクロロ安息香酸)、エンドタール (7-オキサビシクロ (2,2,1)-ヘプタン-2,3-ジカルボン酸)、メコプロップ ([2-(2-メチル-4-クロロフェノキシ)プロピオニ酸])、2,4-

5-T(2,4,5-トリクロロ酢酸)、2,3,6-TBA(2,3,6-トリクロロ安息香酸)、グルホシネート-アソニウム(3-アミノ-3-カルボキシプロピル)-メチルホスフィネット、イマザビル(2-[4,5-ジヒドロ-4-メチル-4-(1-メチルエチル)-5-オキソ-1H-イミダゾール-2-イル]-5-エチル-3-ピリシンカルボン酸)、イマザクイン(2-[4,5-ジヒドロ-4-メチル-4-(1-メチルエチル)-5-オキソ-1H-イミダゾール-2-イル]-3-キノリンカルボン酸)、ピアラファス(ロレキセオラニン-4-イル-メチル-キスフィネット)、及びその混合物等からなる群から選択し得る。

さらに新規により、グリホセート及び歯受容体(任意の界面活性剤)組成物中に含まれる被膜崩壊の代わりに細胞壁崩壊を組成物に配合し得る。

本発明の組成物中に固体水不溶性細胞壁崩壊剤を用いるのが好ましい。その崩壊においては、細胞壁は微細粉末として組成物中に存在する:スルホニルウレア、例えばスルホメツロン-メチル(2-[3-(4,6-ジメチルビリミジン-2-イル)ウレイドスルホニル]安息香酸)、及びクロルスルフロン(1-

-2-クロロフェニルスルホニル)-3-(4-メトキシ-6-メチル-1,3,5-トリアシン-2-イル)ウレア)、リウロン(N'-[3,4-ジクロロフェニル]-N,N-ジメチルウレア)、シマジン(2-クロロ-4,6-ビス(エチルアミノ)-5-トリアシン)、メトスルフロン-メチル(メチル-2-[[4-メトキシ-4-メチル-1,3,5-トリアシン-2-イル]アミノ]-カルボニル]-アミノ]スルホニル]安息香酸)、クロリムロン-エチル(エチル-2-[[4-メトキシビリミジン-2-イル]アミノ]-カルボニル]-アミノ]スルホニル]安息香酸)、リヌロン(N-(3,4-ジクロロフェニル)-N-メトキシ-メチルウレア)、アトラジン(2-クロロ-4-エチルアミノ)-6-(イソプロピルアミノ)-3-トリアシン)、及びその混合物等。それは分散剤を含むのが望ましい。

例えば、水不溶性細胞壁崩壊剤は、水分散性顆粒として上記組成物中に液体又は固体で存在してもよい:アラクロール(2-クロロ-2',6'-ジエチル-N-メトキシメチルアセタニド)、アセトクロール(2-クロロ-2'-エチル-6'-メチル-N-エトキシメチルアセトアニド)、アトラジン(2-

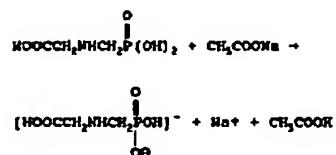
-クロロ-4-(エチルアミノ)-6-(イソプロピルアミノ)-3-トリアシン、メトラクロール(2-クロロ-6'-エチル-N-(2-メトキシ-1-メチルエチル)アセト-6-オキド)、ホメサフェン(5-[2-クロロ-4-(トリフルオロメチル)フェノキシ]-N-(メチル-スルホニル)-2-ニトロベンザミド)、オキシフルオルフェン(2-クロロ-1-(3-エトキシ-4-ニトロフェノキシ)-4-(トリフルオロメチル)ベンゼン)、フェノキサプロッパー-エチルエチル-2-[4-(8-クロロ-2-ベンゾキサゾリルオキシ)フェノキシ]プロピオネート)、リウロンN'-(3,4-ジクロロフェニル)-N,N-ジメチルウレア、メトスルフロン-メチル、シマジン-6-クロロ-N,N'-ジエチル-1,3,5-トリアシン-2,4-ジアミン、クロリムロン-エチル、リヌロン、クロルスルフロン、スルホメツロン-エチル及びその混合物等。

好適な歯受容体は、例えばアンモニウム及びアルカリ金属硫酸塩、重碳酸塩、メタホウ酸塩、酢酸塩、クエン酸塩、磷酸塩、シウ酸塩、リン酸塩、プロピオン酸塩、ビロリン酸塩、メタケイ酸塩、オルトケイ酸塩、亜硫酸塩、チオ硫酸塩、テトラホ

ウ酸塩、一級リン酸塩、トリポリリン酸塩、メタリン酸塩、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、四ナトリウムEDTA、及びその混合物等からなる群から選択される。

本発明においては、組成物は実質的に未反応のグリホセート(N-ホスホノメチルグリシン)、歯受容体及び任意に固体又は液体界面活性剤を含有する。液体界面活性剤は、十分な少量で存在する場合、又は大量の添加剤、例えば硫酸アンモニウムが存在する場合、又は高濃度酸キャリアー上に吸着される場合に用い得る。

歯受容体の例として、理論に待られずに、酢酸ナトリウムを用いると、グリホセート/酢酸ナトリウム混合物を水に溶解すると以下の反応が起きる。



グリホセートに関するpK_a値は2.27、5.58及び10.25である。塩基性塩がグリホセートを可溶化するのに

有用であるためには、2. 27より多少大きいpK_a値を有する酸の量でなければならない。さらに、酸無體、例えばシウ酸として沈殿する場合を除いて、酸は水溶性である。多數の酸のpK_a値及びダリキセートを可溶化するためにそれらの酸（即ちナトリウム、カリウム、アンモニウム等）から用い得る塗基の当量を表1に示す。

塗基の当量	酸可溶化塗基の当量*									
	1	1	2	2	3	3	4	4	5	5
pK _a	4.75	6.00	6.36	10.25	3.08	4.47	5.40			
ホウ酸										
カルボン酸										
クエン酸										
EDTA										
塩酸	3.75									
グリコール酸	3.83									
乳酸	3.08									
シュウ酸	1.23	4.19								
リン酸	2.12	7.21	12.67							
プロピオン酸	4.87									
ビロリン酸	0.85	1.48	5.77	8.22						
ローケイ酸	9.7	12.0								
オーケイ酸	9.86	11.70	12.00	12.00						
コハク酸	4.16	5.61								
延胡索酸	1.81	6.91								
琥珀酸	3.22	4.82								
チオ硫酸										
四ホウ酸										
c = 4, c = 9										

* ナトリウム、カリウム、アンモニウム、アミン等のようなアグリセート塗を可溶化するため、塗基の2当量だけを用い得る。
** EDTA及びそのモノマー及びナトリウム塩は水溶性塗が得いため、塗基の2当量だけを用い得る。

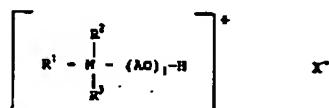
任意の非イオン性界面活性剤の例としては、非イオン性界面活性剤、陽イオン性界面活性剤、陰イオン性界面活性剤及び両性界面活性剤、その混合物等、好ましくはN-ホスホノメチルグリシン又はその塩の除草剤活性を増大するものが挙げられる。

任意の非イオン性界面活性剤の例としては、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンブロッカポリマー、ポリオキシエチレンアルキルフェノール、ポリオキシエチレンオレイルエーテル、アルキルグリコシド、及びその混合物等が挙げられる。

任意の陰イオン性界面活性剤の例としては、ナトリウム、カリウム及びアミン塩を含めたナトリウムラウリル硫酸塩、ナトリウムモノ-及びリーアルキルナフタレンスルホン酸塩、ナトリウムアルファ-オレフィンスルホン酸塩、ナトリウムアルカンスルホン酸塩、及びその混合物等が挙げられる。

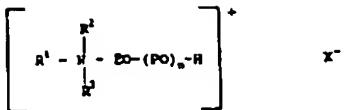
任意の陽イオン性界面活性剤の例としては、エトキシル化脂肪アミン及びそれに對応する第四塩、例えばエトキシル化タローアミン、エトキシル化オレイルアミン、エトキシル化ココアミン及びエトキシル化ソイアミン、及びその混合物等が挙げられる。

任意の陽イオン性界面活性剤の例としては、プロポキシル化第四アンモニウム界面活性剤が挙げられる。このような界面活性剤は次式を有する：



（式中、A又は各Aは2又は3個の炭素原子を有するアルキレン基を示し；R¹及びR²は各々独立して1～5個の炭素原子を有するアルキル基であり；R³は1～5個の炭素原子を有するアルキル基であるか又は式(AO)_n-Hを有する基であり；I（R³がアルキル基である化合物の場合）又はI+（R³が式(AO)_n-Hを有する基である化合物の場合）は2～20の値を有し；X⁻は好適な陰イオンである）。

本発明の好適な組成物は、グリセート除草剤及び第四アンモニウム化合物を含有し、第四アンモニウム化合物は次式で示される構造を有する：



(式中、-EO-はエチレンオキシド基であり、-PO-はブロビレンオキシド基であり、R¹及びR²は各々独立して1～3個の炭素原子を有するアルキル基であり；R³は1～3個の炭素原子を有するアルキル基、式(EO)_n-Hを有する基、又は式EO-(PO)_n-Hを有する基であり、n(R³)がアルキル基である化合物の場合)又はn+m(R³)が式EO-(PO)_n-Hを有する基である化合物の場合)は2～20の値を有し；X⁻は好適な陰イオンであり、n及びmは各々独立して変化する整数である)。

任意の好適な両性界面活性剤の例は、モナテリクス、ミラノール、ペタイン、ロンザイン、及びその混合物等である。

N-ホスホノメチルグリシンの歴史上許容可能な好ましい例としては、アンモニウム、イソプロピルアミン、トリメチルカルボニウム、イミノケラア塩、ナトリウム、カリウム塩、及びその混合物等が挙げられる。

別の選択では、本発明の組成物はさらに、硫酸アンモニウム、

硫酸カリウム、塩化カリウム、硫酸ナトリウム、ウレア、その混合物等を含有し得る。所望により、組成物は系抱合を含有してもよい。

所望により、組成物はさらに、相変剤、急速発泡添加剤、温湯剤、被除草剤、染料、顔料、分散剤、潤滑防止剤、埋粘剤、カルシウムイオン対調剤、苦味剤、その混合物等を含有し得る。埋粘剤は一般に、ナトリウムリグニンスルフェート、でんぶん、セルロース錠等体、高分子ポリオキシエチレン、ゴム、及びその混合物等からなる群から選択される。

所望により、本発明のドライ水溶性農業上許容可能な組成物は、發酵成分、N-ホスホノメチルグリシン、吸受容体及び任意に固体又は液体界面活性剤を、任意に發酵硫酸アンモニウムと一緒に配合し、その後これらの成分を配合して上記の組成物を生成することからなる方法で開発し得る。任意に、配合成分を粉砕してもよい。配合操作後、湿式押出を実施し、その後任意の乾燥工程を実施する。

本発明はさらに、草が存在する場合に適用するとの同様に除草剤的有効量の本発明の組成物を枯死又は制御すべき植物又は雑草の場所に適用することにより雑草を枯死又は制御する方法

実験部

実施例1

例えば吸受容体を有し、任意の界面活性剤を用いる水溶性粉末(WSP)組成物を、予め50メッシュ以下にすり潰しておいた成分を配合して調製した。N-ホスホノメチルグリシン/任意の界面活性剤の重量比は2:1であった。それより高い又は低い比を用いてもよい。固形態より5%余分な吸受容体を通常用いる。本実施例の組成物を以下に示す。

を包含する。本発明の組成物の形態は、例えば直角性粉末を、あるいは序ましくは着脱水を加えて雑草に着脱組成物を噴霧するのに適している。

本発明の組成物の好ましい形状は、長さ約2インチ(5.1cm)×幅約1/2インチ(1.3cm)×厚さ約1/2インチ(1.3cm)であるが、所望によりそれより大きい又は小さいサイズを用いてもよい。好ましい重量は、約1～約36グラムの範囲である。

一般にポンプアップ型又は手動作型スプレーを用いて、本発明の着脱組成物を雑草又は植物に散布する。スプレーは序ましくは約12オンス(340グラム)の透明水で満たし、本発明の組成物を含有する緩衝剤を加える。緩衝剤を溶解させ(約1～3分)、次いでさらに水を加える(約12オンス(340グラム))。

以下の実施例で本発明及び本発明の他のいくつかを説明する。これらの実施例は新規の組成物及び除草剤的使用的説明であって、本発明の範囲を限定するものではない。

図表1

既存管体、重量%	グリセート ^a (重量%)	界面活性剤 ^b (重量%)		SWS-131触媒 (重量%)
		界面活性剤 ^c	界面活性剤 ^d	
リン酸三ナトリウム 15.15	41.63	Uteonite A05	21.34	-
リン酸三ナトリウム 21.21	41.63	-	26.34	4.45
ショウガカリウム・H ₂ O 54.11	11.31	-	21.37	-
硫酸ナトリウム 21.91	12.15	-	25.34	-
硫酸ナトリウム 21.19	10.40	-	21.46	4.45
クエン酸ナトリウム 31.17	41.95	-	21.41	-
プロピオニン酸ナトリウム 21.34	41.37	-	21.43	4.45
プロピオニン酸ナトリウム 21.33	41.81	-	21.43	-
四水クエン酸ナトリウム 18H ₂ O 44.24	37.31	-	14.61	-
亜硫酸ナトリウム 21.03	32.09	-	24.37	-
重碳酸ナトリウム 11.84	30.91	-	24.15	-
酢酸ナトリウム 21.04	41.21	-	26.79	4.45
二ナトリウムジヒドロキシカルボネート 2H ₂ O 0.51	31.01	-	24.46	-
四ナトリウムジヒドロキシカルボネート 0.51	40.21	-	14.61	-
ショウガ酸ナトリウム 21.21	41.21	-	21.41	-
ショウガ酸ナトリウム 21.15	41.71	-	21.61	4.45
四水ホウ酸ナトリウム 6H ₂ O 31.63	41.51	-	22.37	4.45
酢酸アンモニウム 31.12	30.65	-	15.22	-
酢酸カリウム 21.81	41.31	-	14.61	-
リン酸三カリウム 35.65	41.66	-	14.21	4.45

バイオアッセイによりグリセート誘導剤活性に対する種々の被覆管体の相対的貢献度を調べるために、水溶性粉末（WSP）純物を調査した。本実験例ではWSP純物の組成物を示す。

図表2

既存管体、重量%	グリセート ^a (重量%)	界面活性剤 ^b (重量%)		SWS-131触媒 (重量%)	
		界面活性剤 ^c	界面活性剤 ^d		
既存管体、重量%	A	B	C	D	
アクリレート (11.95)	14.43	45.22	52.35	14.51	16.10
ヒドロキシカルボネート (10.96)	14.43	45.22	52.35	14.51	16.10
ヒドロキシカルボネート (9.11)	0.59	26.43	31.16	31.16	31.16
ヒドロキシカルボネート (9.11)	0.59	0.59	1.59	1.59	1.59
硫酸ナトリウム	11.15	1.69	1.69	1.69	1.69
硫酸ナトリウム	11.15	1.69	1.69	1.69	1.69
プロピオニン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
リン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
四水ホウ酸ナトリウム・10H ₂ O	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
既存管体、重量%	E	F	G	H	I
既存管体、重量%	J	K	L	M	N
アクリレート (11.95)	14.43	14.43	14.43	14.43	14.43
ヒドロキシカルボネート (10.96)	14.43	14.43	14.43	14.43	14.43
ヒドロキシカルボネート (9.11)	0.59	0.59	0.59	0.59	0.59
硫酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
硫酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
プロピオニン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
リン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
四水ホウ酸ナトリウム・10H ₂ O	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
既存管体、重量%	O	P	Q	R	S
既存管体、重量%	T	U	V	W	X
アクリレート (11.95)	14.43	14.43	14.43	14.43	14.43
ヒドロキシカルボネート (10.96)	14.43	14.43	14.43	14.43	14.43
ヒドロキシカルボネート (9.11)	0.59	0.59	0.59	0.59	0.59
硫酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
硫酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
プロピオニン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
リン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
四水ホウ酸ナトリウム・10H ₂ O	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
既存管体、重量%	Y	Z	A	B	C
既存管体、重量%	D	E	F	G	H
アクリレート (11.95)	14.43	14.43	14.43	14.43	14.43
ヒドロキシカルボネート (10.96)	14.43	14.43	14.43	14.43	14.43
ヒドロキシカルボネート (9.11)	0.59	0.59	0.59	0.59	0.59
硫酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
硫酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
プロピオニン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
リン酸ナトリウム	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15
四水ホウ酸ナトリウム・10H ₂ O	11.15	11.15	11.15	11.15	11.15

* Uteonite A05 の結果を示す。
** 不活性チャーフィー上のシリコーン触媒。

** Uteonite A05 水溶液を充填し、粉末化した。示したバイオセンサーは液体触媒に適するものである。
** Uteonite A05 はドライ粉末である。この界面活性剤の結果が粉砕により見出された。

*** DMSO 一及び二ナトリウムHPO₄は水に不溶性である：したがって、グリセートを可溶化するには四ナトリウム

実施例 8

実施例 2 の処方物のバイオアッセイ試験の結果を以下に示す。
ラウンドアップ除草剤を従来技術の比較例として用いた。処方物 A 対処方物 I の結果を比較すると、酸素アンモニウム (A.S.) の有効性が示される。

本明細書で示した通常バイオアッセイ試験のすべてにおいて、約 30 psi (21 キロパスカル) で約 20 ガロン／エイカー (18.7 リットル／ヘクタール) を適用するよう度量りしたトラックスプレーを用いて、除草剤噴霧器にグリセート WSP 処方物の水性溶液を噴霧した。

実施例 3

いくつかの水溶性除草剤処方物の生物学的評価

処方物 比較	処方物	濃度 (%)
A	セサミル酸ナトリウム	11.9
B	HCOONa	11.3
C	CH ₃ COONa	11.3
D	Na ₂ CO ₃	11.8
E	Na ₂ SO ₃	11.1
F	Na ₃ PO ₄	14.4
G	CH ₃ CH ₂ COONa	11.1
H	K ₂ PO ₄	11.1
I	Na ₂ B ₄ O ₇	1.1
J	HCOONa (NH ₄) ₂ SO ₄	11.1
K	HCOONa NH ₄ Cl	1.1
L	(COONa) ₂	11.1
M	Na ₄ EDTA	11.1
N	未記載	1

* 処方例 4 週目の除草剤としてのセイパンモロコシ (Jatropha curcas) 上での 4 つの割合 (1/8, 1/4, 1/2 及び 1 ポンドのグリセート／エーカー) の平均。

実施例 4

グリセート活性に及ぼす種々の親水性体の作用を測定するために、Witconate 間面活性剤を用いて WSP 処方物を調製した。界面活性剤は、バイオアッセイのために噴霧器中にタンク混合した。以下の実施例 5 は界面活性剤エトキシル化試験アミンを、実施例 6 は Witconate AOS を用いた結果を示す。

実施例 4

成分	処方量 (g)											
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L
グリセート (14.4)	70.41	14.41	70.37	14.39	70.37	62.37	65.11	52.51	61.21	24.41	24.71	67.31
WSP Q-311			4.00									
A. 鹽酸ナトリウム	31.19											
B. 酢酸ナトリウム		34.34										
C. フロビオニ酸ナトリウム												
D. リン酸ナトリウム												
E. リン酸ナトリウム												
F. 四水クエン酸ナトリウム (15.0)												
G. 遠紅酸ナトリウム												
H. リン酸カリウム												
I. シュウ酸ナトリウム (15.0)												
J. 水酸化ナトリウム												
K. 四ナatrium EDTA												
L. グリセート (10.92)	10.31	64.38	70.32	11.35	61.14	62.14	61.01	52.44	62.35	16.43	74.44	52.44

実施例 5

約 1/5-約 1/8 の範囲のエトキシル化度を有するエトキシル化アミン界面活性剤を用いた WSP 処方物 (親水性体)

親水性体	濃度 (%) *
グリセートのイソプロピルアミン塩	55.2
硫酸ナトリウム	27.5
酢酸ナトリウム	38.8
炭酸ナトリウム	36.7
リン酸ナトリウム	56.3
亜硫酸ナトリウム	47.1
プロピオン酸ナトリウム	47.9
リン酸カリウム	62.1
四水クエン酸ナトリウム	30.8
酢酸カリウム	54.2
水酸化ナトリウム	45.8
ショウ酸ナトリウム	48.3
四ナトリウム EDTA	87.1
未処理チェック	0

* 処方例 4 週間目のセイパンモロコシ上での 4 つの割合 (1/4, 1/2, 3/4 及び 1 ポンド グリセート／エーカー (0.28, 0.56, 0.84 及び 1.12 kg/ba)) の平均。

** 全噴霧場中に 0.25% エトキシル化アミン界面活性剤が存在する。

エトキシル化アミン界面活性剤 (実施例 5) と実施例 3 のものとのバイオアッセイ結果の比較により、因習が界面活性剤に大いに依っていることが示された。

試験例 6

WITCONATE AOS界面活性剤を用いたWSP表面活性剤の調査

図表 6

組成物	組成(%)	
	SJG1	MGI1
グリセラートのイソブロピルアミン類	49.3	42.6
水酸化ナトリウム	36.1	40.6
プロピオニン酸ナトリウム	41.7	40.6
リン酸ナトリウム	30.0	31.7
酢酸カリウム	26.3	45.6
水酸化ナトリウム	41.3	23.3
ソルビ酸ナトリウム	54.5	50.0
四ナトリウムEDTA	47.2	35.6
未処理チエック	0	0

* セイパンモロコシにおける8つの出来(1/4、1/2、1/4グリセラート/エーカー(1/11、1/11、RDL 1/16(1/16))の平均、並びにアサガホにおける8つの出来(1/2、1、1/4グリセラート/エーカー(1/11、1/11、1/16(1/16))の平均。

** 生せイバーモロコジ。

*** ドラガオ。

**** シュクダナトリウム及びナトリウムEDTAを含むセイパンモロコシに対する結果はセイパンモロコシに対する結果であり、一方示す結果ナトリウム及びナトリウムカリウムを含むセイパンモロコシに対する結果である。したがって、最適結果を示す酸性物質は、酸性物質によっており、他の結果(アルカリ性、1/16(1/16)から1/16(1/16))からでは判断困難である。

試験例 7

グリセラートWSP表面活性剤を調査し、グリセラートに對して最適の出来の値との間に水溶性表面活性剤を用いて水溶性であることを示した。

グリセラートWSP表面活性剤を調査し、グリセラートに對して最適の出来の値との間に水溶性であることを示した。

組成物	組成(%)		最適表面活性剤(%)	グリセラート/WSP表面活性剤(%)
	グリセラート	水溶性表面活性剤		
11.0%グリセラート	11.0%	89.0%	89.0%	4 : 1
11.1%グリセラート	11.1%	88.9%	88.9%	4 : 1
11.2%グリセラート	11.2%	88.8%	88.8%	4 : 1
11.3%グリセラート	11.3%	88.7%	88.7%	4 : 1
11.4%グリセラート	11.4%	88.6%	88.6%	4 : 1
11.5%グリセラート	11.5%	88.5%	88.5%	4 : 1
11.6%グリセラート	11.6%	88.4%	88.4%	4 : 1
11.7%グリセラート	11.7%	88.3%	88.3%	4 : 1
11.8%グリセラート	11.8%	88.2%	88.2%	4 : 1
11.9%グリセラート	11.9%	88.1%	88.1%	4 : 1
12.0%グリセラート	12.0%	88.0%	88.0%	4 : 1
12.1%グリセラート	12.1%	87.9%	87.9%	4 : 1
12.2%グリセラート	12.2%	87.8%	87.8%	4 : 1
12.3%グリセラート	12.3%	87.7%	87.7%	4 : 1
12.4%グリセラート	12.4%	87.6%	87.6%	4 : 1
12.5%グリセラート	12.5%	87.5%	87.5%	4 : 1
12.6%グリセラート	12.6%	87.4%	87.4%	4 : 1
12.7%グリセラート	12.7%	87.3%	87.3%	4 : 1
12.8%グリセラート	12.8%	87.2%	87.2%	4 : 1
12.9%グリセラート	12.9%	87.1%	87.1%	4 : 1
13.0%グリセラート	13.0%	87.0%	87.0%	4 : 1

全油脂において、グリセラート/WSPは、調査しない限り1 : 1である。

* 表面活性剤の組成割合を調査していない場合。

調査例3 - 調査例の範囲外。

調査例4 - 調査例中の範囲外。

調査例5 - 調査例を除く。

試験例 8

組成物	組成(%)		最適表面活性剤(%)	調査例モニタム(%)
	グリセラート	水溶性表面活性剤		
11.0%グリセラート	11.0%	89.0%	89.0%	89.0%
11.1%グリセラート	11.1%	88.9%	88.9%	88.9%
11.2%グリセラート	11.2%	88.8%	88.8%	88.8%
11.3%グリセラート	11.3%	88.7%	88.7%	88.7%
11.4%グリセラート	11.4%	88.6%	88.6%	88.6%
11.5%グリセラート	11.5%	88.5%	88.5%	88.5%
11.6%グリセラート	11.6%	88.4%	88.4%	88.4%
11.7%グリセラート	11.7%	88.3%	88.3%	88.3%
11.8%グリセラート	11.8%	88.2%	88.2%	88.2%
11.9%グリセラート	11.9%	88.1%	88.1%	88.1%
12.0%グリセラート	12.0%	88.0%	88.0%	88.0%
12.1%グリセラート	12.1%	87.9%	87.9%	87.9%
12.2%グリセラート	12.2%	87.8%	87.8%	87.8%
12.3%グリセラート	12.3%	87.7%	87.7%	87.7%
12.4%グリセラート	12.4%	87.6%	87.6%	87.6%
12.5%グリセラート	12.5%	87.5%	87.5%	87.5%
12.6%グリセラート	12.6%	87.4%	87.4%	87.4%
12.7%グリセラート	12.7%	87.3%	87.3%	87.3%
12.8%グリセラート	12.8%	87.2%	87.2%	87.2%
12.9%グリセラート	12.9%	87.1%	87.1%	87.1%
13.0%グリセラート	13.0%	87.0%	87.0%	87.0%

* Witconate AOSは使用し、粉末化された状態である。AMGは調査例である。
両方ともに粉体状態である。

実験例 9

市販の水性ラウンドアップ処方物より優れたグリセートWSP処方物の重要な利点は、前記に列挙した實質を含めた固体過剰剤を緩和する能力である。水不溶性液体緩和剤は、少量で又はキャリアーに吸着させて用いてよい。実験例9はさらに複数の酸性基を含有するWSPと組み合わせた緩和剤の多様の例を示す。

実験例 9 組成物質グリセート-WSP	過剰剤 (%)		過剰剤 (%)		過剰剤 (%)	
	酸性基 (%)	酸性基 (%)	酸性基 (%)	酸性基 (%)	酸性基 (%)	酸性基 (%)
硫酸アンモニウム 16.11 水酸化ナトリウム 17.71 チオ硫酸ナトリウム 58.18 リン酸三カリウム 7.54 リン酸ナトリウム 4.62 リン酸三ナトリウム 0.12 硫酸ナトリウム 4.12 水酸化ナトリウム 0.60 硫酸アンモニウム 5.05 シエク酸・H ₃ 12.14	16.11 17.71 58.18 7.54 4.62 0.12 4.12 0.60 5.05 12.14	16.11 17.71 58.18 7.54 4.62 0.12 4.12 0.60 5.05 12.14	16.11 17.71 58.18 7.54 4.62 0.12 4.12 0.60 5.05 12.14	16.11 17.71 58.18 7.54 4.62 0.12 4.12 0.60 5.05 12.14	16.11 17.71 58.18 7.54 4.62 0.12 4.12 0.60 5.05 12.14	16.11 17.71 58.18 7.54 4.62 0.12 4.12 0.60 5.05 12.14
D. 1. 55g A 2. 00g WDG E. 1. 63g B 3. 00g WDG F. 3. 00 WDG	均量 重量比 24Hr 過剰剤 2回逆さにする必要あり 過剰剤 15回逆さにする必要あり 過剰剤 16回逆さにしても固分散なし 過剰剤 9mmの粗い粒状 過剰剤 9mmの粗い粒状	均量 重量比 1Hr 切削外観 4mm粒度 過剰剤 2回逆さ 過剰剤 15回逆さ 過剰剤 16回逆さ 過剰剤 9mmの粗い粒状 過剰剤 9mmの粗い粒状	均量 重量比 24Hr 過剰剤 2回逆さにする必要あり 過剰剤 15回逆さにする必要あり 過剰剤 16回逆さにしても固分散なし 過剰剤 9mmの粗い粒状 過剰剤 9mmの粗い粒状	均量 重量比 1Hr 切削外観 4mm粒度 過剰剤 2回逆さ 過剰剤 15回逆さ 過剰剤 16回逆さ 過剰剤 9mmの粗い粒状 過剰剤 9mmの粗い粒状	均量 重量比 24Hr 過剰剤 2回逆さにする必要あり 過剰剤 15回逆さにする必要あり 過剰剤 16回逆さにしても固分散なし 過剰剤 9mmの粗い粒状 過剰剤 9mmの粗い粒状	均量 重量比 1Hr 切削外観 4mm粒度 過剰剤 2回逆さ 過剰剤 15回逆さ 過剰剤 16回逆さ 過剰剤 9mmの粗い粒状 過剰剤 9mmの粗い粒状

H₃ S臭は、生成されたチオ硫酸の分解を示す。

++ 処方例は 15% WSP-1H時間過剰を示す。

*** 乾燥して100%を生成する。

グリセートWSPと水不溶性緩和剤の組み合せは、硫酸水化物又はWDG処方物のような補助剤を用いて達成し得る。補助剤は液体又はWDGのような液体であって、その例としては、アラクロール、アトラジン、MON-097、デュアル、ゴール、ハイップ、活性剤等が挙げられる。固体過剰剤、例えばオウスト、グリン、ジケロン、シマジン、アトラジン、クリー、クラッシャー等は、微細粉末としてWSPに混入し得る。分散剤は後者処方物中で有益である。

グリセートノアラクロール処方物は、水酸化ナトリウム及びWilconate AOK又はSellogen HRを基盤にしてアラクロール水分散性原粒(67%)をグリセートWSPと配合することにより調製した。処方物を以下に示す：

成分	A	B
グリセート (15.1%)	16.11	16.11
水酸化ナトリウム (76%)	16.11	16.11
Wilconate AOK (11%)	11.84	-----
Sellogen HR (15%)	-----	12.11

以下の配合物を調製し、40mlの水に加えて、攪拌し、小皿の50mlのネスラー試験管に注ぎ入れて、10回逆さにして、以下の結果を得た：

界面活性剤の選定

Morwet B (1%)
Morwet DB (1%)
Morwet BPW (1%)
Morwet IP (1%)
Morwet M (1%)
Sellogen HR (1%)

ナトリウムジブチルオクタレンスルホキート
ナトリウムジブチルオクタレンスルホキート
アルキルオクタレンスルホキートヒスルホキシレートの配合物
ナトリウムジブチルオクタレンスルホキート
ナトリウムセチルオクタレンスルホキート
ナトリウムセチルオクタレンスルホキート
ナトリウムリソブロピルオクタレンスルホキート

Wilconate KAS-10 (3%) - Wilco EXP 10-10 C, カリウムジアルキルホキート
ナトリウムジアルキルホキート (3%) - ナトリウムEXP 10-10 A
カリウムテトラデシルスルホキート (3%) - ナトリウムEXP 10-10 B
ナトリウムテトラデシルスルホキート (3%) - ナトリウムEXP 10-10 C
Wilconate NAS-10 (3%) - Wilco EXP 10-10 D (ナトリウムテトラデシル及び
ヘキサデシルスルホキートの混合物)

Wilconate KOAS-10 (3%) - Wilco EXP 10-10 A, カリウムジアルキルオクタレンスルホキート
Wilconate AOS-10 (3%) - Wilco EXP 10-10 B, ナトリウムテトラデシルアルファセラフィンスルホキート
Wilconate KOAS-10-10 (3%) - Wilco EXP 10-10 B, カリウムテトラデシル及びヘキサデシル
アルファセラフィンスルホキート

Wilconate AOK (3%) - ナトリウムテトラデシル酸ベキサデシルアルファオクタレンスルホキート
(Wilconate AOSの代替品)

Aerosol OTB (1%) - Naオクタノルスルホキート/光学香料
Igepon T-II (1%) - ナトリウムN-メチル-N-オキルウレート

実験例1
WSP処方物とともに用いるためのドライ界面活性剤の生物学的評価

固形 (%) :

界面活性剤処理物	シュウ酸ナトリウム***	水酸化ナトリウム****
Wilconate AOK	61.7	24.4
Morwet B	35.0	13.3
Morwet DB	50.0	22.8
Morwet EFW	11.7	7.8
Morwet IP	43.7	21.1
Morwet M	16.1	15.6
Sellogen HR	42.2	13.3
Wilco KAS-10	49.7	22.2
Wilco C ₁₄ SO ₃ K	43.0	7.8
Wilco C ₁₄ SO ₃ Na	22.8	12.2
Wilco KAOS-10	49.4	27.2
Wilco KAOS 14-10	40.0	47.8
Wilco KAOS 14-10	57.8	27.2
未処理チェック	0	0

* 处理後4週間目のセイパンモロコシに対する3つの割合 (1/4, 1/2, 1/4
ボンド グリセロセート/エーカー (0.21, 0.51, 0.111/1)) の平均。

** 全界面活性剤を加えて 100%純分で 1.5%の界面活性剤を生成した。

*** 試験容体としてのシュウ酸ナトリウムを基礎にした処方物に関する固形%。

**** 試験容体としての水酸化ナトリウムを基礎にした処方物に関する固形%。

実験例 1-1

50メッシュ以下の成分から以下の主バッチを調製した。

成分	A	B
グリセロセート (11.5%)	11.72	15.41
シュウ酸ナトリウム	11.25	-----
水酸化ナトリウム (1%)	-----	11.11
	111.11	100.00
含まれるグリセロセート%	11.11	15.41

所定量の主バッチ及び界面活性剤を加えて 2 : 1 の N-
スルノメチルグリシン界面活性剤比とすることにより、各々の
界面活性剤の有効性を比較するバイオアッセイのための噴霧溶
液を調製した。バイオアッセイ結果を実験例 1-2 に示す。

実験例 1-3

グリセロセート WSP 処方物を野外試験するために界面活性
剤として Wilconate AOK 及び Sellogen
HR を用いた。10か所の場所での操作は完全プロック計
画を用いて 3 回取り換えた 10 × 25 フィート (3.05 ×
7.62 メートル) の野外試験プロットは、放牧場のグリセロセ
ート濃度の 1.0 ガロン/エーカー (0.4 リットル/ヘクタール)
の WSP の水性溶液を適用するために適度なトラクター取付
噴霧器を用いて噴霧された。

野外試験した処方物の成分を以下に示す：

実験例14

野外試験地作物の組成物を以下に示す：

コード番号	成 分	%	重量/グラム
245	グリホセート (15.1%)	51.79	1420.5
	ショウ酸ナトリウム	20.64	568.2
	Wilconate AOK (10%)	27.57	756.0
246	グリホセート (15.1%)	49.08	1420.6
	ショウ酸ナトリウム	19.56	568.2
	Sellogen HR (15%)	31.36	907.4
247	グリホセート (15.1%)	54.18	1420.5
	水酸化ナトリウム (11%)	16.79	444.7
	Wilconate AOK (10%)	28.84	756.0
248	グリホセート (15.1%)	51.28	1420.5
	水酸化ナトリウム (11%)	16.04	444.7
	Sellogen HR (15%)	32.73	907.4
249	グリホセート (15.1%)	16.36	1420.5
	水酸化ナトリウム (11%)	5.12	444.7
	Wilconate AOK (10%)	8.71	756.0
	硫酸アンモニウム	69.81	6059.8
250	グリホセート (15.1%)	18.47	1420.5
	2, 4-D (1%)	32.43	2494.0
	Wilconate AOK (10%)	34.95	2688.0
	水酸化ナトリウム (11%)	14.15	1088.0
251	グリホセート (15.1%)	10.33	1420.5
	2, 4-D acid) (1%)	18.14	2494.0
	Wilconate AOK (10%)	19.55	2688.0
	水酸化ナトリウム (11%)	7.91	1088.0
	硫酸アンモニウム	44.07	6059.8
252	グリホセート (15.1%)	23.85	1420.5
	Dicamba (1%)	18.54	1104.1
	Wilconate AOK (10%)	45.18	2691.3
	水酸化ナトリウム (11%)	12.43	740.4
253	グリホセート (15.1%)	11.82	1420.5
	Dicamba (1%)	9.19	1104.1
	Wilconate AOK (10%)	22.40	2691.3
	水酸化ナトリウム (11%)	6.16	740.4
	硫酸アンモニウム	50.43	6059.8
312	グリホセート (15.1%)	54.19	143.74
	水酸化ナトリウム (11%)	18.97	45.01
	Wilconate AOS-12 (10%)	28.84	75.50

野外試験データの要約を実験例15及び16に示す。

Wilconate AOS及びショウ酸ナトリウムを基礎としたWSPは市販の寄せ集め品 (Roundup) と等価である。水酸化ナトリウム/Wilconate AOK/硫酸アンモニウムWSPは、寄せ集め品/硫酸アンモニウムタンクミックスと等価である。グリホセート/2, 4-D WSPはLandmasterより活性が低く、一方両地作物が硫酸アンモニウムを含有する場合にはそれらは等価であった。同様の結果が、ジカルバ系を用いて得られた。

実験例15

グリホセート水溶性粉末 (WSP) 地作物に関する野外試験結果

地 類	対 比 (%)	
	東 本	西 本
市販寄せ集め品 (比較として)	74	61
グリホセート/Sellogen Sellogen/ショウ酸ナトリウム WSP	71	59
グリホセート/AOK/ ショウ酸ナトリウム WSP	79	66
グリホセート/ Sellogen/NaOH WSP	58	43
グリホセート/ AOK/NaOH WSP	69	58
寄せ集め/AS ^{**} (比較として)	82	75
グリホセート/ AOK/NaOH/AS WSP	82	77

* 多数の場所でのプロットの平均。

** 硫酸アンモニウムを寄せ集め品 (Roundup) のタンクミックスに加えた。

実験例16パッケージミックスWSP除草物に関する野外試験データ

品種	対照(%)	
	草本	広葉
LANDMASTER® ¹¹	81	86
グリホセート/2, 4-D WSP	76	75
LANDMASTER/AS	84	89
グリホセート/2, 4-D/AS/WSP	84	90
MON-8778 ¹²	82	73
グリホセート/DICAMBA WSP	73	58
MON 8778/AS	84	79
グリホセート/DICAMBA/AS WSP	83	79

* 多数の場所でのプロットの平均。

** グリホセート及び2, 4-Dの市販の水性除草物。

*** 水性ラウンドアップ除草剤/ジカルバタンクミックス。

実験例17

以下の処方にしたがって、プレミックス粉末除草物を調製した：

成 分 :	重量 (%)	重量 %
Filter-1酸 (F1 (四))	34.7%	34.7%
重碳酸ナトリウム	33.5%	33.4%
重碳酸ナトリウム	10.0	10.0
Soy (7) 原油剤	10	10.0
PEG 3350	10.0	10.0
Catalyst 1158		
叶	10000.0	100.0%

グリホセート酸は実質的に未反応であった。これは、本発明の除草物に水が感知されない場合には、グリホセートがグリホセート酸として植物に適用されることを意味する。水が加えられると、グリホセートは酸受容体と反応して、グリホセート酸が生成されると考えられる。

先ずプレミックス粉末をChilsonatorと呼ばれるローラー圧縮機を用いてウエファー形状に圧縮することにより、このプレミックス粉末を水溶性顆粒 (W S C) に

處理加工した。このローラー圧縮機は約4000ポンド／平方インチ (27.6×10^3 キロパスカル) の圧力を用いた。このChilsonatorから得られたウエファーを次に、Straub 48粉砕機 (穀物用ミルに似ているが、Filterミルが肝ましい) を用いて約12メッシュ又はそれ未溝に粉碎した。Straub粉砕装置に依り得られた粉末をふるい分けし、Chilsonatorに再循環させた。所望量の顆粒が生成されるまで、Chilsonator及びStraub粉砕機を用いた処理を繰り返した。

今説明した工程で調製された粉末をホッパーに送り込み、次に容量供給系を用いてダイ／パンチ／成形配列に送り込んでタブレットを調達した。パンチとダイに圧力をかけて、タブレットを調達した。圧力を取り除いてタブレットを取り出した。タブレットは重さ約4.6グラム±0.2グラムであった。タブレットは直徑約0.75インチ (1.91 cm) 、高さ約0.5インチ (1.27 cm) であった。この方法を用いて、異なる重量及び形状のタブレットを調達することもできる。

実験例18

グリホセート酸原体 (4.8% w/w) 、Doddigen 4022として公知のプロボキシル化第四アンモニウム界面活性剤 (1.5% w/w) 、9.7%及び硫酸アンモニウム (3.0% w/w) を、均質ドウが得られるまで、逆置型ミキシング槽機で混合物とする。次に炭酸ナトリウム (1.2% w/w) をドウに加え、これを迅速に均質化して、押出機により直ちにペレット化し、その後撹拌床乾燥機で乾燥させる。押出工程後に得られた押出颗粒の最終成物は、1% w/wの水を含有する。

押出颗粒を、水を調節した噴霧タンクに入れる。次に炭酸ナトリウムでグリホセートを中和し、溶液中にCO₂を放出させて発泡すると、押出颗粒は外部振搾しなくとも1分未溝で溶解する。比較のために、熱稳定性を有しない同様の颗粒を外部振搾しないと実際に溶解せず、振搾下では溶解に2～4分を要し、実際に要する時間は噴霧タンク中の乱流に依っている。

これらのグリホセートWSP除草物の重要な利点は、固体表面活性剤を緩和する能力である。最も重要な固体表面活性剤の1つは、重量の所要のレベルでWSPに含有され得る硫酸アンモニウム

である。硫酸アンモニウムは、実施例15及び16に示したように、生物学的活性の増大に寄与する。硫酸アンモニウムは水性グリセート／界面活性剤処方箋中では低度に相溶性であるに過ぎない。硫酸アンモニウムはさらに、実施例16に示すように水溶性塩を生成する硫酸塩剤とのグリセートWSPパッケージミックス中の有効な固体添加剤である。

本発明のWSP又はWSG生成物の粒子サイズは、噴霧によると通常前に生成物が完全に溶解する限り変化し得る。グリセートWSPの好みしい製造方法は、慣用的装置を用いて個々の成分を粉碎し、リオシン又はV-配合機のような装置を用いて配合するか又は配合成分を粉碎することを包含する。多数の界面活性剤及びいくつかの歯受容器は非常に吸湿性であるため、全量作は、好ましくは密閉装置中で実施し、ポリエチレン又はポリエチレン製紙袋等のような防水性パッケージングを要する。特に好みしい複数のパッケージングは、外部防水性容器又は袋に入れた水溶性袋である。

所望により、本発明の粉末化物質を実施例17でさらに例証するように個々の手段により圧縮し、次いで粉碎してふるいにかけて、粒状物質を生成し得る。気体生成成分を混入してさら

に迅速に粉碎させて粒状物質の生成を作る。

所望により、重炭酸カリウム、硫酸ナトリウム又カリウム、その混合物等、あるいはアルカリ土類金属の炭酸塩又は重炭酸塩、その混合物等のような別の炭酸塩を用いてもよい。

所望により、重碳酸カリウム又はアルカリ土類金属の重碳酸塩のような別の重碳酸塩を用いてもよい。

個々の分子量のPBG、ステアリン酸メチル又はステアリン酸マグネシウム、その混合物等を含めた別の結合剤を用いてもよい。AntiFogTM 30-INDのような別の結合剤を用いてもよい。

所望によりPVPのような結合剤を用いてもよいが、このような使用は任選である。

WSG処方箋中に少ないパーセンテージの表面活性剤ベースの歯受容器（重炭酸ナトリウム／硫酸ナトリウム、重碳酸アンモニウム、その混合物等）を用いると、歯粉を破裂させて堆積となる割合を増大する二重化現象を水の存在下で発生させる。

本発明のWSP又はWSG組成物は各成分の比率に開通して大きく変化し得る。界面活性剤を用いる場合は、約4:1～約1:2のグリセート／界面活性剤比が好みしい範囲である：

1:0を含む他の比は、界面活性剤の存在が必要でないか又は望ましくない場合に用い得る。グリセート対歯受容器の比率は、表1に示した歯受容器の有効当量重量に依っている。グリセートの溶度を提供するには、1モルのグリセートに対して1有効当量の歯受容器が必要である。市販のグリセートにおける歯受容器はわずかな余分を要するため、通常、2～5%余分の歯受容器を用いる。グリセートは2.5で約1.0重量%の程度まで水に可溶性であるため、WSP又はWSGの使用に依り、即ち噴霧に用いる水の容量に依って、理論量未満の有効当量の歯受容器で十分である。WSP及びWSG処方箋は一般に、圧力及び／又は回転運動による有効な影響を受けない。前記のように、いくつかの成分、特に界面活性剤の吸湿性のために、水分はドライグリセート処方箋の処理加工及び腔室における主要因心事である。

緑草を枯死又は制御するためにドライグリセート含有処方箋を用いて本方法を実施する場合、最良の方法は、除草剤的有効量の本発明の組成物を水に添加し、その後噴霧又は多数の公知の噴霧機の1つにより枯死又は制御すべき植物の場所に適用することを包含する。過剰の薬が降りた植物に適用する場合に

は水の添加は必要ない（が、添加することを推奨する）。本発明の組成物の適用は、植物が除草剤的有効量のN-キスホノメルグリシンと接触するように行う。

多数の歯受容器が本発明では使用可能であるが、しかしシクロ糊ナトリウム及び重炭酸ナトリウムが好みしく、重炭酸ナトリウムが最も好みしい。

多数の固体界面活性剤をグリセートWSP又はWSGに用いて得るが、しかしナトリウムテトラデシル／ヘキサデシルアルファーオレフィンスルホネート（TritonTM A-OK）が好みしい。低界面活性剤含量、即ち約2～5%含量の処方箋では、グリセート活性に及ぼす高増強作用により、液体エトキシル化酸化アミン界面活性剤が好みしい。プロオキシル化四アンモニウム界面活性剤を用いる場合、1.5重量%まで使用できる。

要約すると、一般的の水性処方箋より優れたドライグリセートベースの処方箋の利点としては、高活性物（グリセート）含量、固体又は水不溶性液体添加剤との相溶性、粉末又は水溶性顆粒のような固体及び液体水不溶性除草剤との相溶性、低成本パッケージの使用、及び最終市販製品の配合前にグリセ

セートを創造する必要性がないことが挙げられる。

本発明を特許の範囲に関して説明しておたが、その詳細は限定されるものではなく、図々の等価物、変更及び修正は、本発明の精神及び範囲を逸脱しない限りにおいて行われることは明らかである。このような等価の態様は本発明の範囲内に含まれるものと理解される。

国際検査報告

PCT/US 92/00274

I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		International Application No.	
In which classification does your Invention fall?		International Application No.	
According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC		PCT/US 92/00274	
Int.Cl. 5 A01N7/20 // (A01N7/20, 25/14, 25/12)			
II. FIELDS SEARCHED			
Primary Examiners Searcher			
Classification System		Classification System	
Int.Cl. 5		A01N	
Documentation Received after First Examination to the Examiner were Documents are Subject to the Prior Art			
III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT*			
Category		Classification of Document, and References, where appropriate, of the relevant passage	
X		WORLD PATENTS INDEX LATEST Week 8736, 1 August 1990 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 87-253854 & JP-A-62 175 408 (ISHIKAWA SANJO KABUSHIKA see abstract	
X		WO-A-P 007 275 (MITSANTO COMPANY) 12 July 1990 see examples 6, 16-23 see claims	
X		EP-A-0 360 441 (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPANY) 28 March 1990 see page 8, line 40 see page 16, line 24 - line 27 see claims 3-1, 10	
IV. CERTIFICATION			
Date of the First Examination of the International Search		Date of Filing of an International Search Report	
19 MAY 1992		23.06.92	
Name and Address of the International Searching Authority		Signature of Designated Officer	
EUROPEAN PATENT OFFICE		DALAFOURKI A. 	

国際検査報告

US 9200274
SA 57070

This search has the present family documents related to the present document cited in the above-mentioned International search report. The numbers are as contained in the European Patent Office EPO file no. The European Patent Office is in its free State for those countries which are Party to the Patent Cooperation Treaty.

II. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT (CONTINUED FROM THE SECOND SHEET)		International Application No.	
Classification of Document, and References, where appropriate, of the relevant passage		Starting to Date No.	
X	EP-A-0 387 165 (RHONE-POULENC AGROCHIMIE) 12 September 1990 see page 5; examples 4, 5	3-22	

Patent Document which is search report	Publication Date	Patent Family (Country)	Publication Date
WO-A-9007275	12-07-90	AI-A- 4833390 CA-A- 2006616 EP-A- 0378985 EP-A- 0452366	01-08-90 20-03-90 25-07-90 23-10-91
EP-A-0360441	28-03-90	AI-A- 4191569 EP-A- 0432200 JP-T- 4500515 WO-A- 9002446	02-04-90 19-06-91 30-01-92 22-03-90
EP-A-0387165	12-09-90	FR-A- 2544036 AU-A- 5078990 CA-A- 2011531 JP-A- 2289505	14-09-90 20-09-90 07-09-90 29-11-90

* For more details about the above 1 see Official Journal of the European Patent Office, Vol. 12/92

フロントページの続き

(81)指定国 E P (AT, BE, CH, DE,
DK, ES, FR, GB, GR, IT, LU, MC, N
L, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM
, GA, GN, ML, MR, SN, TD, TG), AU
, BB, BG, BR, CA, CS, FI, HU, JP,
KP, KR, LK, MG, MN, MW, NO, PL, R
O, RU, SD